



TITLE:

# Central PeakとTunneling Model(「強誘電性相転移の理論的研究」報告,モレキュール型研究計画)

AUTHOR(S):

高田, 慧; 大成, 逸夫

---

CITATION:

高田, 慧 ...[et al]. Central PeakとTunneling Model(「強誘電性相転移の理論的研究」報告,モレキュール型研究計画). 物性研究 1975, 23(6): D94-D100

ISSUE DATE:

1975-03-20

URL:

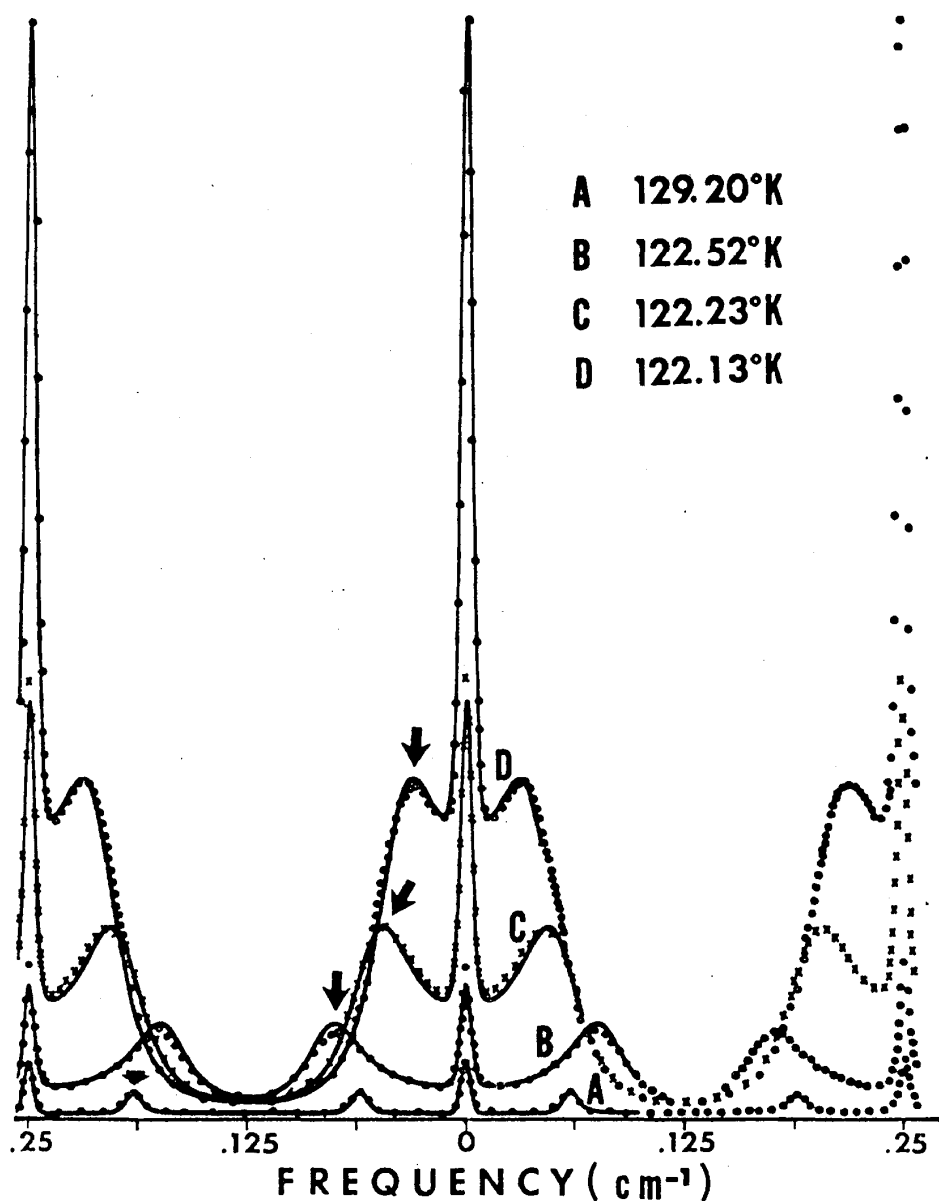
<http://hdl.handle.net/2433/88916>

RIGHT:

# Central Peak と Tunneling Model

教育大理 高 田 慧  
神奈川大工 大 成 逸 夫

最近Lagakos - Cummins<sup>1)</sup> はKDP に対して非常に精度の高い90° Brillouin 散乱の実験で図 1 の如く見事な central peak を観測した。 この central peak の巾は非



( 図 1 )

常に狭く ( $\tau \sim 10^{-9}$  sec ),  
T  $\rightarrow$  T<sub>c</sub> としても殆んど変化しない。又高さはほぼ (T - T<sub>c</sub>)<sup>-2</sup> で増加する傾向が見られる。これは通常の critical slowing down で見られる T  $\rightarrow$  T<sub>c</sub> で巾  $\Gamma$  が狭くなると共に高さが 1/ $\Gamma$  に比例して増加することと較べて著しく異った特徴である。一方 Brillouin doublet の位置は T  $\rightarrow$  T<sub>c</sub> と共

に中央に寄ってくる。これは piezo-ferroelectric の特徴で ferroelectric mode と結合した TAphonon によるものである。このような様相は最初 Cowley 達<sup>2)</sup>によって提唱された relaxation mode と soft mode との結合の考えによって説明される。KDP の場合に於ては proton mode を記述する Green 関数<sup>3)</sup>  $\chi(q, \omega)$  は次のような形になる：

$$\chi(q, \omega) = \frac{1}{\omega_0(q)^2 - \omega^2 - i\omega\Gamma - B\chi_A(q, \omega) - \chi_R(q, \omega)} \quad (1)$$

$$\chi_A(q, \omega) = \frac{v^2 q^2}{v^2 q^2 - \omega^2} \quad , \quad \chi_R(q, \omega) = \frac{\delta^2 i \omega \tau}{1 - i \omega \tau} \quad (2)$$

$$\omega_0(0)^2 = k|T - T_0| \quad (3)$$

$\chi_A(q, \omega)$ ,  $\chi_R(q, \omega)$  は TAphonon 及び relaxation mode の Green 関数で簡単の為に  $\chi_A(q, \omega)$  に於る damping を無視した。又  $\omega$  の小さい領域で考えるので TOphonon との結合は落してある。relaxation mode が何に起因するのかについては後で議論するとして(1)の形から導かれる幾つかの結論を調べよう。先ず soft mode の周波数は

$$\omega_S(0) \propto (|T - T_C| + \Delta T^{\text{tot}})^{1/2} \quad (4)$$

$$\Delta T^{\text{tot}} = \Delta T + \Delta T^{\text{res}}.$$

となり、一見して  $T_C$  で 0 にはならないことが判る（これは LST relation の break down と呼ばれる）。ここに  $\Delta T$  は TA phonon との結合で生じた free crystal の転移温度  $T_C$  と clamped crystal の転移温度  $T_0$  との差即ち  $\Delta T \equiv T_C - T_0 = k/B$  である。 $\Delta T^{\text{res}} = \delta^2/k$  は  $\omega\tau \gg 1$  の場合の見かけ上のずれで、Cowley 達は KDP 型強誘電体では  $\Delta T^{\text{tot}} \simeq \Delta T^{\text{res}}$  であり、 $C_sDA$  等では  $\Delta T^{\text{tot}}$  が異常に大きい事を説明した。TA phonon の音速  $\tilde{v}$  を(1)の pole から求めると

$$(\tilde{v}/v)^2 = (|T - T_C| + \Delta T^{\text{res}}) / (|T - T_C| + \Delta T^{\text{tot}}) \quad (5)$$

となる。無論  $\omega\tau = \tilde{v}q \ll 1$  では  $\Delta T^{\text{res}} \simeq 0$  と見做せる。光吸収スペクトルは  $\omega \sim 1/\tau$  では次のようになる：

$$I(q, \omega) \propto \frac{T}{\omega} \text{Im} \chi(q, \omega) \propto \Gamma + \frac{1}{1 + \omega^2 \tau} |T - T_C|^2 \quad (6)$$

これは  $T \rightarrow T_C$  の時 peak の巾は不変で高さが  $|T - T_C|^{-2}$  で増加するので図 1 の ce -

高田 慧, 大成逸夫

entral peakの様子を良く記述している。ところでLagakos-Cumminsの実験では $\tau \sim 10^{-9}$  sec,  $\delta^2 \sim 1 \text{ cm}^{-2}$  つまり  $\Delta T^{\text{res}} = \delta^2/k \simeq 0.025^\circ\text{K}$  である。一方(4), (5)に於ては  $\Delta T^{\text{tot}} \simeq \Delta T = 4.3^\circ\text{K}$  で soft mode のずれ  $\Delta T^{\text{tot}}$  は Cowley 達の指摘とは異り, TA phonon との結合からくる  $\Delta T = T_C - T_0$  であることが判る。又 Lagakos-Cummins は  $\tau \sim 10^{-9}$  sec は Cowley 達の評価  $\tau \sim 10^{-10} \sim 10^{-11}$  sec と order が異なることを強調している。

現在迄 central peak 即ち relaxation mode について幾つかの議論がなされている。その中で Cowley 達<sup>2),4)</sup> による relaxation mode を phonon density のゆらぎに帰着させた議論及び Schwable<sup>5)</sup> による Mori formula に基く hydrodynamical approach<sup>6)</sup> が重要と思われる。tunneling model に関しては Blinc-Žekš<sup>7)</sup> が  $T < T_C$  では NMR 理論に習って relaxation process を spin-lattice relaxation に帰着し,  $T > T_C$  では fluctuation field による relaxation mode によって central peak が実現する可能性を議論している。

Schwable の議論は microscopic details に依らず random force のゆらぎが relaxation mode になるという訳であるが, これは如何なる場合に妥当な議論となるかの検討が必要と思われる。

Cowley 達の考えは物理的で非常に興味のある議論である。方法は relaxation mode を phonon density の mode に帰着させ Sham の second phonon の議論を用いている。Cowley 達は  $q=0$  の場合即ち  $\chi_R(0, \omega) = i\omega\tau\delta^2/(1-i\omega\tau)$  を問題にしたが, 然しながら図 1 に於る状況は  $Dq^2 \sim \omega \ll v_2q$  ( $v_2$  は第二音波の音速) の場合である。後者の場合にも  $q=0$  のときと同じ形つまり  $\chi_R(q, \omega) = i\omega\tau_D\delta^2/(1-i\omega\tau_D)$  と書けるが, このときの  $\chi_R(q, \omega)$  の pole は thermal diffusion に対応していて,  $1/\tau_D = v_2^2 q^2 \tau / 3 = Dq^2$  である。簡単な評価をすると  $\tau_D \sim 10^{-9}$  sec となって実験と良く合う。

次に tunneling mode に於る relaxation mode-Blinc-Žekš はこの mode が実験的に central peak を与えると主張した一を擾動論の立場から検討しよう<sup>3)</sup>。

強誘電相 ( $T < T_C$ ) では relaxation mode の存在を簡単に理解することができる。それは  $T < T_C$  では proton tunneling mode と molecular field 方向 (longitudinal component) の spin 成分  $S^z$  が結合していて,  $S_i^z = S_i^+ S_i^- - 1/2$  なる関係式から proton tunneling mode の relaxation process が  $S^z$  の relaxation motion を引き起す

為である。従ってまた両者の緩和時間は同程度の大きさである。また  $S^z$  の運動はエン  
トロピー変化を伴うから thermal diffusion mode と結合するはずで、 $T < T_C$  では  
proton tunneling mode が thermal diffusion mode と結合する。このことは  $\omega \gg$   
 $Dq^2$  であるか  $\omega \ll Dq^2$  であるかに応じて  $\chi(q, \omega)$  が adiabatic か isothermal か  
を規定する。 $T < T_C$  では relaxation は tunneling model の dynamics としてそれ  
自身に内在しているわけであって、Blinc-Zekš の主張の如く spin-lattice rela-  
xation によると考える積極的理由は無いと思われる。問題は高温側  $T > T_C$  ではどう  
かということである。吾々の方法<sup>9)</sup>は  $T > T_C$  での tunneling model hamiltonian

$$H = -2J \sum_i S_i^z - \frac{1}{2} \sum_{i,j} J_{i,j} S_i^x S_j^x \quad (7)$$

に対して Matsubara Green 関数

$$\begin{aligned} D(q, i\omega_n) &= \int_0^{1/T} \langle S_q^x(\tau) S_{-q}^x \rangle e^{i\omega_n \tau} d\tau \\ &= \frac{\Pi(q, i\omega_n)}{1 - \frac{J_q}{N} \Pi(q, i\omega_n)} \quad (\Pi(q, i\omega_n) \text{ は irreducible part}) \end{aligned} \quad (8)$$

に摂動論を適用するのであるが、通常の多体問題の手法のくりこみをし易くするために  
spin 演算子を fermion 演算子で表示しておく；

$$S_i^z = \frac{1}{2} (C_{i+}^+ C_{i+} - C_{i-}^+ C_{i-}), \quad S_i^\sigma = C_{i\sigma}^+ C_{i-\sigma}$$

そうすると spin cumulant は一体 fermion Green 関数  $G_0$  の loop として表わされる (図 1)。そこで  $G_0$  をくりこむ方程式 (図 2) を近似的に解くと次のような表式を得る；

$$G_0(i\omega_n) = - \frac{\omega_n^2 + J^2 - \sqrt{(\omega_n^2 + J^2)(a^2 + J^2 + \omega_n^2)}}{(a^2/2)(i\omega_n^2 + \sigma J)} \quad (9)$$

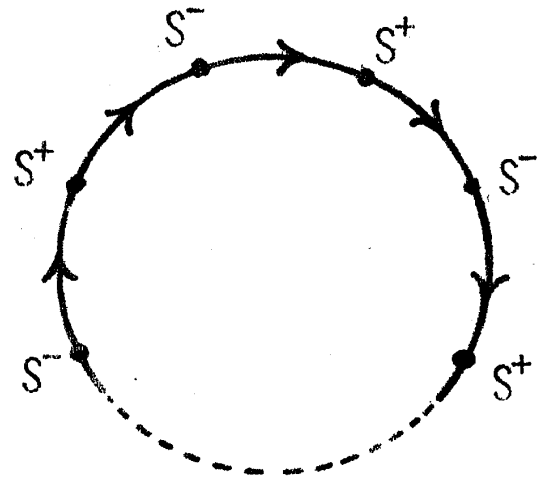
ここに  $a^2 \equiv (4/N^2) \sum_q |J_q|^2 \langle S_q^x S_{-q}^x \rangle$  . (9) を使って spectral density  $\rho_\sigma(\omega) =$

高田 慧, 大成逸夫

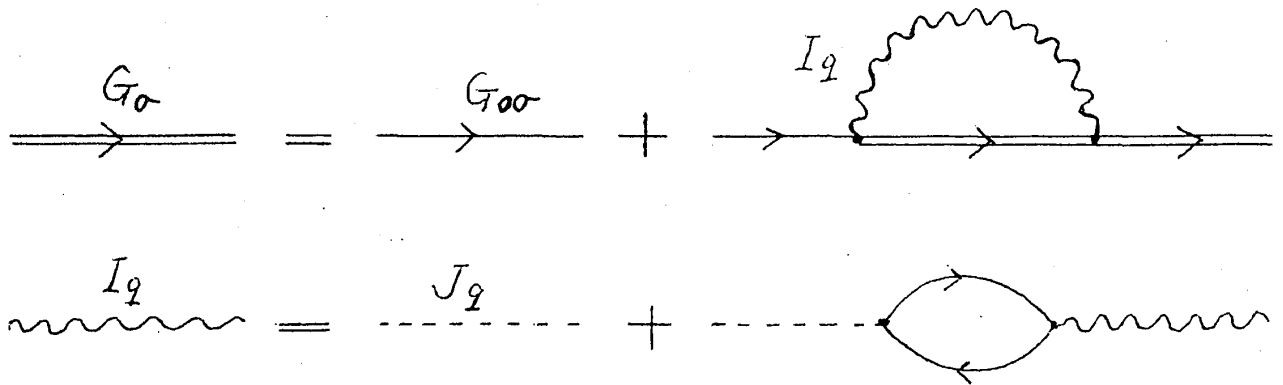
$-(1/\pi) \text{Im} G_\sigma(\omega+i\delta)$  を求めると概略  
(図Ⅳ) に示す結果が得られて short  
range order が出現していることが判  
る。spin cumulant を計算するには(9)  
式の  $G_\sigma(i\omega_n)$  の表式では厄介なので近  
似的に Lorentzian で置き換える；

$$G_\sigma(\omega+i\delta) = \frac{A_\sigma}{\omega + \sigma \tilde{\mathcal{Q}} + i\Gamma/2} + \frac{1 - A_\sigma}{\omega - \sigma \tilde{\mathcal{Q}} + i\Gamma/2} \quad (10)$$

ここで  $\tilde{\mathcal{Q}} \equiv \frac{1}{2}(\mathcal{Q} + \sqrt{\mathcal{Q}^2 + a^2})$ ,  $\Gamma \equiv \sqrt{\mathcal{Q}^2 + a^2} - \mathcal{Q}$ ,  $A_\sigma$  は  $\omega \equiv -\sigma \tilde{\mathcal{Q}}$  を中



(図 I)



(図 II)

心として持つ  $\rho_\sigma(\omega)$  の面積である。この  $G_\sigma(\omega+i\delta)$  の表式を使って spin cumulant  
の最低次 (図Ⅴ) のくりこみを計算すると

$$\begin{aligned} \Pi(i\omega_n) &= -T \sum_m G_\sigma(i\omega_n + i\omega_m) G_{-\sigma}(i\omega_m) \tanh(\beta\mathcal{Q}) / \tanh(\beta\mathcal{Q}/2) \\ \xrightarrow{i\omega_n \rightarrow \omega+i\delta} &\simeq C_1 \frac{i\omega\Gamma - 4\tilde{\mathcal{Q}}^2 - \Gamma^2}{(\omega+i\Gamma)^2 - (2\tilde{\mathcal{Q}})^2} + C_2 \frac{i\Gamma}{\omega+i\Gamma}, \end{aligned} \quad (11)$$

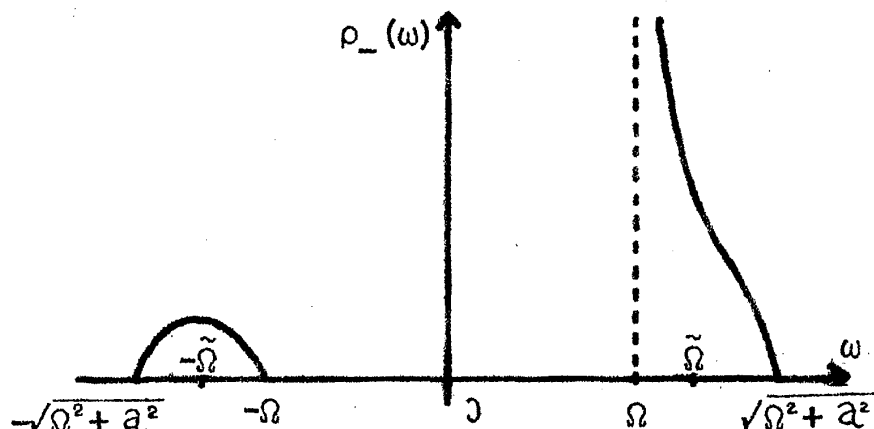
$C_1, C_2$  は  $\omega$  によらない定数で di-gamma 関数の導関数  $\Psi'$  で表わされる :

$$C_1 = \{(1-A_\sigma)^2 + A_\sigma^2\} \Psi'$$

$$\left(\frac{1}{2} + \Gamma/4\pi T\right) / \pi^2 T,$$

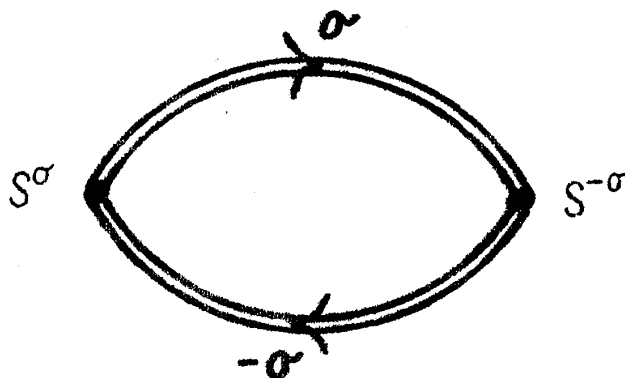
$$C_2 = 2A_\sigma (1-A_\sigma) \Psi'$$

$$\left(\frac{1}{2} + \Gamma/4\pi T\right) / \pi^2 T.$$



( 図 N )

(11)の結果は relaxation mode の緩和時間が強誘電相のときと同じように proton tunneling mode の緩和時間と同程度であることを意味している。従って tunneling model に内在する relaxation mode は soft mode のそれと同程度の緩和時間を持っていて、



( 図 V )

Lagakos - Cummins が KDP で観測した鋭い central peak は Blinc - Žekš の言う resonance mode とは無関係である。

前に述べたように Lagakos - Cummins の観測した central peak は thermal diffusion mode と関連していると考えられるから、tunneling model に基いて議論しようと思えば、hamiltonian(7) に  $S_{q_1}^x Q_{q_2}^a Q_{q_3}^a$  ( $Q_q^a$  は TA phonon の変数) の項を付け加えれば  $T > T_C$  でも thermal diffusion mode と proton mode の結合を説明できるはずである。結果は Coombs - Cowley<sup>4)</sup> の理論になると予想されるが、唯彼等が  $q = 0$  とおいた

高田 慧, 大成逸夫

のとは異り  $v_2 q \gg \omega \sim Dq^2$  の領域であることを考慮に入れば KDP の central peak を説明し得ると予想される。

#### 参考文献

- (1) N. Lagakos and H. Z. Cummins, Phys. Rev. B **10** (1974) 1063.
- (2) R. A. Cowley, G. J. Coombs, R. S. Katiyar, J. F. Ryan and J. F. Scott, J. Phys. C **4** (1971) L203.
- (3) S. Takada, I. Ohnari, H. Kurosawa and Y. Ohmura, Phys. Lett. **49A** (1974) 329, Progr. Theor. Phys. **53** no. 4 (to be published).
- (4) G. J. Coombs and R. A. Cowley, J. Phys. C **6** (1973) 121.
- (5) F. Schwabl, Z. Physik **254** (1972) 57.
- (6) classical hydrodynamical approach は C. P. Enz の仕事がある (preprint).
- (7) R. Blinc and B. Žekš, Adv. Phys. **21** (1972) 693.
- (8) L. J. Sham, Phys. Rev. **156** (1967) 494.
- (9) S. Takada, I. Ohnari, H. Kurosawa and Y. Ohmura, preprint.